

PAT-NO: JP02004115295A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 2004115295 A

TITLE: LOW TEMPERATURE SINTERABLE CERAMIC COMPOSITION FOR HIGH
FREQUENCY AND METHOD OF PRODUCING THE SAME

PUBN-DATE: April 15, 2004

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
ISHIKAWA, MASAYUKI	N/A
KITANI, NAOKI	N/A
MIZUSHIMA, KIYOSHI	N/A
TAKIMOTO, MIKIO	N/A

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
NIKKO CO	N/A

APPL-NO: JP2002278290

APPL-DATE: September 25, 2002

INT-CL (IPC): C04B035/453, C04B035/16 , H01B003/12 , H01P007/10

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a low temperature firable ceramic composition which can be fired at 800-1,000°C and has a low **dielectric** constant and **dielectric** loss in a high frequency region of >17GHz, and a method of producing the low temperature firable ceramic composition.

SOLUTION: The low temperature sinterable ceramic composition contains CaO, **MgO**, ZnO, and **SiO₂** in an amount of 82-98 mass % in total, 0.0-13.5 mass % of B₂O₃ and/or **Bi₂O₃**, and 0.9-4.5 mass % Li₂O. In the composition, CaO, **MgO**, ZnO, and **SiO₂** satisfy following molar ratios: CaO:**MgO**:ZnO = x:x:2(1-x) (wherein, x is >0.1 and <0.9); and (CaO+MgO+ZnO):**SiO₂** = 2:y (wherein, y is >1.3 and <3.6).

COPYRIGHT: (C)2004,JPO

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-115295

(P2004-115295A)

(43) 公開日 平成16年4月15日(2004.4.15)

(51) Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C04B 35/453	C04B 35/00 P	4G030
C04B 35/16	H01B 3/12 336	5G303
H01B 3/12	H01P 7/10	5J006
H01P 7/10	C04B 35/16 Z	

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願2002-278290 (P2002-278290)	(71) 出願人	390010216 ニッコー株式会社 石川県松任市相木町383番地
(22) 出願日	平成14年9月25日 (2002.9.25)	(74) 代理人	100081086 弁理士 大冢 邦久
		(74) 代理人	100117732 弁理士 小澤 信彦
		(72) 発明者	石川 正行 石川県松任市相木町383番地 ニッコー 株式会社内
		(72) 発明者	木谷 直樹 石川県松任市相木町383番地 ニッコー 株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 高周波用低温焼結磁器組成物及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 800℃～1000℃で焼成することが可能であり、17GHz以上の高周波領域において、低い比誘電率と、低い誘電損失を有する低温焼成磁器組成物及び低温焼成磁器の製造方法を提供する。

【解決手段】 CaO、MgO、ZnO及びSiO₂を合計量で82～98質量%、B₂O₃及び/またはBi₂O₃ 0.0～13.5質量%及びLi₂O 0.9～4.5質量%を含み、

CaO:MgO:ZnO = x:x:2(1-x) [ここで、0.1 ≤ x ≤ 0.9]、(CaO+MgO+ZnO):SiO₂ = 2:y [ここで、1.3 ≤ y ≤ 3.6]

の含有比(モル比)を満たす低温焼結磁器組成物及びその製造方法。

【選択図】 なし

10

【特許請求の範囲】

【請求項1】

CaO、MgO、ZnO及びSiO₂を合計量で82～98質量%、B₂O₃及び／またはBi₂O₃ 0.0～13.5質量%及びLi₂O 0.9～4.5質量%を含み、
CaO:MgO:ZnO=x:x:2(1-x)〔ここで、0.1≤x≤0.9〕、(CaO+MgO+ZnO):SiO₂=2:y〔ここで、1.3≤y≤3.6〕
の含有比(モル比)を満たす低温焼結磁器組成物。

【請求項2】

少なくともCa、Mg、Znのいずれか1種の元素とSiを含む1種以上の複合酸化物相を含む請求項1記載の低温焼成磁器組成物。

10

【請求項3】

CaとMgとSiを含むディオプサイト系結晶相、ZnとSiを含むウイレマイト系結晶相及びBi₂O₃-SiO₂系結晶相及び／またはB₂O₃-SiO₂非結晶相及びLi₂O-SiO₂系結晶相を含む請求項2記載の低温焼成磁器組成物。

【請求項4】

前記複合酸化物が、さらに、他のアルカリ土類金属、遷移金属、アルカリ金属、及び13族元素からなる群から選択される1種以上の元素を含む請求項2または3記載の低温焼成磁器組成物。

【請求項5】

17GHzでの誘電率(ε_r)が8.5以下、誘電損失(tanδ)が1.0×10⁻³以下である請求項1乃至4のいずれかに記載の低温焼成磁器組成物。

20

【請求項6】

CaO、MgO、ZnO及びSiO₂を合計量で82～98質量%、B₂O₃及び／またはBi₂O₃ 0.0～13.5質量%及びLi₂O 0.9～4.5質量%を含み、
CaO:MgO:ZnO=x:x:2(1-x)〔ここで、0.1≤x≤0.9〕、(CaO+MgO+ZnO):SiO₂=2:y〔ここで、1.3≤y≤3.6〕
の含有比(モル比)を満たす原料粉を所定形状に成形後、800～1000℃で焼成する低温焼成磁器組成物の製造方法。

【請求項7】

Ca、Mg、Znが、少なくともこれらの元素のいずれかとSiを含む1種以上の複合酸化物相として含有されている原料粉を用いる請求項6記載の低温焼成磁器組成物の製造方法。

30

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、低誘電率で低誘電損失の高周波用低温焼成磁器組成物及び低温焼成磁器の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、高度情報化時代を迎え、半導体素子には、高速化、高集積化、実装のより高密度化が求められている。半導体素子における高度化を進めるためには、配線長の短縮等に加え、回路上の信号伝播速度の高速化が不可欠であるが、信号伝播は基板材料の比誘電率の平方根に反比例するため、より低い誘電率の基板材料が必要である。また、高集積化や実装の高密度化のためには、抵抗率の低い配線材料(Ag、Au、Cu等)の使用が求められるが、これらの金属は融点が高いため、配線パターンの印刷後に基板を焼成する多層配線基板では、低温焼成可能な基板材料を用いる必要がある。このため、電子機器用基板材料として従来広く用いられてきたアルミナ基板(誘電率:9～9.5、焼成温度:1500℃前後)は高周波回路基板には適さず、これに代わる、より低い誘電率を有し低温焼成可能な材料が必要とされている。また、マイクロ波、ミリ波帯域での低損失化も要求されている。

40

50

【0003】

そこで、最近では、高速化に対応し得る低誘電率基板材料として、ガラスと無機質フィラーとからなるガラスセラミック材料が検討されている。この種のガラスセラミック材料は、誘電率が3～7程度と低いことから、高周波用絶縁基板として適しており、また、800～1000℃の温度で焼成することができるため、導体抵抗の低いAg、Au、Cu等と同時焼成できるという特徴がある。

【0004】

例えば、特開2000-188017号公報には、ディオプサイト($\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$)型結晶相を析出可能なガラス相と、フィラーとしてMg及び／またはZnとTiとを含む酸化物を含有する1000℃以下で焼成可能な高周波用磁器組成物が開示されている。また、特開2001-240470号公報には、 SiO_2 、 Al_2O_3 、MO(Mはアルカリ土類金属元素)及びPbを含む結晶化ガラス成分と、 Al_2O_3 、 SiO_2 、 MgTiO_3 、 $(\text{Mg}, \text{Zn})\text{TiO}_3$ 、 TiO_2 、 SrTiO_3 、 MgAl_2O_4 、 ZnAl_2O_4 、コージェライト、ムライト、エンスタタイト、ウイレマイト、 $\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 、 $\text{SrAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 、 $(\text{Sr}, \text{Ca})\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_8$ 、フォルステライトの群から選ばれる少なくとも1種のフィラーとからなる高周波用配線基板が開示されている。

【0005】

しかしながら、従来のガラスセラミックス材料は、誘電率は低くても、信号周波数10GHz以上の高周波帯域における誘電損失が概ね 2.0×10^{-3} 以上と高く、高周波用基板材料として実用化し得るに十分な特性を有していない。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

従って、本発明は、Ag、Au、Cu等の低抵抗金属と同時焼成が可能であり、しかも低誘電率及び高周波領域で低誘電損失を実現する低温焼成磁器組成物及び低温焼成磁器組成物の製造方法を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記問題点を解決するべく検討した結果、Ca、Mg、Zn、Siとを特定比率で含有する複合酸化物に対して、 B_2O_3 及び／または Bi_2O_3 と Li_2O を添加した組成物は、800～1000℃以下の温度にて焼成可能であり、かかる組成物を焼成して得られる低温焼成磁器は、低い比誘電率と低い誘電損失を有することを見出し、本発明を完成するに至った。

【0008】

すなわち、本発明は、以下の低温焼成磁器組成物及び低温焼成磁器の製造方法を提供する。

(1) CaO 、 MgO 、 ZnO 及び SiO_2 を合計量で82～98質量%、 B_2O_3 及び／または Bi_2O_3 0.0～13.5質量%及び Li_2O 0.9～4.5質量%を含み、

$\text{CaO}:\text{MgO}:\text{ZnO}=x:x:2(1-x)$ [ここで、 $0.1 \leq x \leq 0.9$]、 $(\text{CaO}+\text{MgO}+\text{ZnO}):\text{SiO}_2=2:y$ [ここで、 $1.3 \leq y \leq 3.6$]の含有比(モル比)を満たす低温焼結磁器組成物。

(2) 少なくともCa、Mg、Znのいずれか1種の元素とSiを含む1種以上の複合酸化物相を含む前記1記載の低温焼成磁器組成物。

(3) CaとMgとSiを含むディオプサイト系結晶相、ZnとSiを含むウイレマイト系結晶相及び $\text{Bi}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 系結晶相及び／または $\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 非結晶相及び $\text{Li}_2\text{O}-\text{SiO}_2$ 系結晶相を含む前記2記載の低温焼成磁器組成物。

【0009】

(4) 前記複合酸化物が、さらに、他のアルカリ土類金属、遷移金属、アルカリ金属、及び13族元素からなる群から選択される1種以上の元素を含む前記2または3記載の低温焼成磁器組成物。

(5) 17GHzでの誘電率(ϵ_r)が8.5以下、誘電損失($\tan \delta$)が 1.0×10^{-3} 以下である前記1乃至4のいずれかに記載の低温焼成磁器組成物。

(6) CaO 、 MgO 、 ZnO 及び SiO_2 を合計量で82~98質量%、 B_2O_3 及び/または Bi_2O_3 0.0~13.5質量%及び Li_2O 0.9~4.5質量%を含み、

$\text{CaO}:\text{MgO}:\text{ZnO}=x:x:2(1-x)$ [ここで、 $0.1 \leq x \leq 0.9$]、 $(\text{CaO}+\text{MgO}+\text{ZnO}):\text{SiO}_2=2:y$ [ここで、 $1.3 \leq y \leq 3.6$]

の含有比(モル比)を満たす原料粉を所定形状に成形後、800~1000℃で焼成する低温焼成磁器組成物の製造方法。

(7) Ca 、 Mg 、 Zn が、少なくともこれらの元素のいずれかと Si を含む1種以上の複合酸化物相として含有されている原料粉を用いる前記6記載の低温焼成磁器組成物の製造方法。 10

【0010】

【発明の実施の形態】

(A) 磁器組成物

本発明の低温焼成磁器組成物は、 CaO 、 MgO 、 ZnO 及び SiO_2 を合計量で82~98質量%、 B_2O_3 及び/または Bi_2O_3 0.0~13.5質量%及び Li_2O 1.5~4.5質量%を含み、

$\text{CaO}:\text{MgO}:\text{ZnO}=x:x:2(1-x)$ [ここで、 $0.1 \leq x \leq 0.9$]、 $(\text{CaO}+\text{MgO}+\text{ZnO}):\text{SiO}_2=2:y$ [ここで、 $1.3 \leq y \leq 3.6$] 20

の含有比(モル比)を満たす低温焼成磁器組成物である。

Ca 、 Mg 、 Zn 及び Si を含有する複合酸化物に対して B_2O_3 及び/または Bi_2O_3 と Li_2O とを含有させることにより、加熱時、 $\text{Bi}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 、 $\text{B}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2$ 、 $\text{Li}_2\text{O}-\text{SiO}_2$ 系液相が形成され、これらの液相の反応を介して800~1000℃以下の温度で焼成できる。

【0011】

CaO 、 MgO 、 ZnO 及び SiO_2 の含有量は合計量で82~98質量%、 B_2O_3 及び/または Bi_2O_3 0.0~13.5質量%及び Li_2O 0.9~4.5質量%である(合計で100質量%。但し、他の元素の酸化物を含む場合はそれらを含めて100質量%としてもよい。)。 Li_2O が0.9質量%より少ないと、800~1000℃の 30
焼成では磁器を十分に緻密化することができない。一方、 B_2O_3 及び/または Bi_2O_3 の量が13.5質量%より多いか、あるいは Li_2O の量が4.5質量%より多いと、17GHzの高周波領域においての誘電損失が 1.0×10^{-3} 以上と高くなる。 B_2O_3 及び/または Bi_2O_3 は好ましくは13重量%以下であり、 Li_2O は好ましくは1.8~4.5質量%の範囲である。

【0012】

CaO 、 MgO 、 ZnO 及び SiO_2 の含有比(モル比)は

$\text{CaO}:\text{MgO}:\text{ZnO}=x:x:2(1-x)$ [ここで、 $0.1 \leq x \leq 0.9$]、 $(\text{CaO}+\text{MgO}+\text{ZnO}):\text{SiO}_2=2:y$ [ここで、 $1.3 \leq y \leq 3.6$] 40

を満たす範囲とする。

上記第1式において $\text{CaO}:\text{MgO}=x:x$ ($=1:1$)とするのはディオプサイト結晶相生成のためである。 CaO と MgO が過少であるとディオプサイトの形成が不十分である。また、 ZnO が過少であるとウイレマイト相の形成が不十分となる。このため、 $0.1 \leq x \leq 0.9$ 、好ましくは $0.2 \leq x \leq 0.8$ とする。

上記第2式において y を上記の範囲に限定したのは、 $y < 1.3$ では CaO 相及び MgO 相及び ZnO 相が過剰となり誘電特性が劣化する。一方、 $y > 3.6$ では SiO_2 相が過剰となり焼結性が劣化し、磁器が緻密化しなくなるためである。

【0013】

本発明では、好ましくは Ca 、 Mg 、 Zn が、少なくともこれらの元素のいずれかと Si を含む1種以上の複合酸化物相として含有されている。 Ca と Mg の80%以上、好まし 50

くは90%以上が少なくともCaとMgとSiを含む複合酸化物相に含まれ、Znの80%以上、好ましくは90%以上が少なくともZnとSiを含む複合酸化物相に含まれていることが好ましい。このような複合酸化物相の例には、少なくともCaとMgとSiを含むディオプサイト系結晶相、及び、少なくともZnとSiを含むウイレマイト系結晶相が含まれる。ここで、ディオプサイト系結晶相とは、 $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$ （ディオプサイト）構造及びこれに属する結晶相であり、ウイレマイト系結晶相とは、 Zn_2SiO_4 （ウイレマイト）構造及びこれに属する結晶相である。

これらの複合酸化物は、磁器組成物の成分から構成される同型の結晶相を含んでもよい。例えば、ウイレマイトに属する結晶相 $\text{Li}_2\text{ZnSiO}_4$ を含んでもよい。なお、本発明の効果を示す限り、複合酸化物相中の金属元素は、その一部が他の金属元素で置換されていてもよい。こうした金属元素には、他のアルカリ土類金属もしくは遷移金属、またはアルカリ金属、13族元素のいずれか1種以上が含まれる。

なお、発明の効果を損なわない限りにおいて、 SiO_2 系結晶相等や非晶質等を含んでもよい。

本発明の組成物は、いずれも800～1000℃の温度範囲での焼成によって相対密度95%以上まで緻密化することができ、得られた低温焼成磁器は、17GHzでの誘電率(ϵ_r)が8.5以下、誘電損失($\tan\delta$)が 1.0×10^{-3} 以下であり、800～1000℃の温度範囲での焼成によって相対密度95%以上まで緻密化されたものである。

【0014】

(B) 低温焼成磁器の製造方法

本発明の低温焼成磁器は、 CaO 、 MgO 、 ZnO 及び SiO_2 を合計量で82～98質量%、 B_2O_3 及び／または Bi_2O_3 0.0～13.5質量%及び Li_2O 0.9～4.5質量%を含み、

$\text{CaO}:\text{MgO}:\text{ZnO} = x:x:2(1-x)$ [ここで、 $0.1 \leq x \leq 0.9$]、 $(\text{CaO}+\text{MgO}+\text{ZnO}):\text{SiO}_2 = 2:y$ [ここで、 $1.3 \leq y \leq 3.6$]

の含有比(モル比)を満たす原料粉を所定形状に成形後、800～1000℃で焼成することにより製造できる。

主原料である CaO 、 MgO 、 ZnO と SiO_2 は各金属酸化物の混合物でもよいが、好ましくはディオプサイト($\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$)及び／またはウイレマイト(Zn_2SiO_4)等の複合酸化物に必要な応じて他の成分を必要量混合したものである。出発原料として用い得る CaO 、 MgO 、 ZnO と SiO_2 は、各金属の酸化物粉末のほかに、焼結過程で酸化物を形成し得る炭酸塩、酢酸塩、硝酸塩等の形態で添加できる。

【0015】

上記の主成分原料に対して、焼結助剤として B_2O_3 粉末、 Bi_2O_3 粉末、 Li_2O 粉末を、主成分原料82～98質量%、 B_2O_3 及び／または Bi_2O_3 0.0～13.5質量%及び Li_2O 0.9～4.5質量%の範囲となるように添加混合する。 B_2O_3 及び／または Bi_2O_3 と Li_2O も、各金属の酸化物粉末のほかに、焼結過程で酸化物を形成し得る炭酸塩、酢酸塩、硝酸塩等の形態で添加できる。

$\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$ 、 Zn_2SiO_4 、 SiO_2 、 ZnO 、 B_2O_3 、 Bi_2O_3 、 Li_2O 等の原料粉末は分散性を高め、低い誘電損失を得るために $2.0\mu\text{m}$ 以下、特に $1.0\mu\text{m}$ 以下の微粉末とすることが望ましい。

【0016】

上記の割合で添加混合した混合粉末に適宜バインダーを添加した後、例えば、金型プレス、押し出し成形、ドクターブレード法、圧延法等により任意の形状に成形後、酸化雰囲気中または、 N_2 、 Ar 等の非酸化性雰囲気中において800℃～1000℃、特に850℃～980℃の温度で1時間焼成することにより相対密度95%以上に緻密化することができる。この時の焼成温度が800℃より低いと、磁器が十分に緻密化せず、1000℃を越えると緻密化は可能であるが、 Ag 、 Au 、 Cu 等の低融点な導体を配線材料として用いることが難しくなる。

【0017】

本発明の方法によれば、複合酸化物から生成するCa、Mg及びZnを主とする固相と $\text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$ 系液相及び／または $\text{B}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$ 系液相及び $\text{Li}_2\text{O} - \text{SiO}_2$ 系液相とのより活性な固相反応が生じる結果、少ない焼結助剤量で磁器を緻密化することができる。このために、誘電損失を増大させる要因となる粒界の非晶質相の量を最小限に抑えることができる。このように本発明の製造方法によれば、磁器中に、少なくともCa及びMg及びSiを含むディオプサイト系結晶相、少なくともZnとSiを含むウイレマイト系結晶相、 $\text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$ 系結晶相及び／または $\text{B}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$ 系非晶質相及び $\text{Li}_2\text{O} - \text{SiO}_2$ 系結晶相を析出させることにより比誘電率を8.5以下に制御できるとともに、誘電損失の低い高周波用磁器を得ることができる。

【0018】

10

(C) 磁器組成物の用途

本発明における磁器組成物は、800～1000℃で焼成可能であることから、特にAg、Au、Cuなどを配線する配線基板の絶縁基板として用いることができる。かかる磁器組成物を用いて配線基板を作製する場合には、例えば、上記のようにして調合した混合粉末を公知のテープ成形法、例えばドクターブレード法、押し出し成形等に従い、絶縁層形成用のグリーンシートを作製した後、そのシートの表面に配線回路層用として、Ag、Au及びCuのうちの少なくとも1種の金属、特に、Ag粉末を含む導体ペーストを用いて、グリーンシート表面に配線パターンをスクリーン印刷法等によって回路パターン状に印刷し、場合によってはシートにスルーホールやビアホール形成後、上記導体ペーストを充填する。その後、複数のグリーンシートを積層圧着した後、上述した条件で焼成することにより、配線層と絶縁層とを同時に焼成することができる。

20

【0019】

【実施例】

以下、実施例及び比較例により本発明を具体的に説明するが、これらは本発明を限定するものではない。

実施例1～27

平均粒径が1μm以下の $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$ 、 Zn_2SiO_4 、 ZnO 、 SiO_2 、 B_2O_3 、 Bi_2O_3 、 Li_2O を酸化物換算の含有比を表1の組成に従い混合した。そして、これらの混合物に有機バインダー、可塑剤、トルエンを添加し、ドクターブレード法により厚さ150μmのグリーンシートを作成した。そして、このグリーンシートを5枚積層し、70℃の温度で150kg/cm²の圧力を加えて熱圧着した。得られた積層体を大気中で、500℃で脱バインダーした後、大気中で表2の条件下に焼成して多層基板用磁器を得た。なお、表中のxは $\text{CaO} : \text{MgO} : \text{ZnO} = x : x : 2(1-x)$ と表した際のxであり、表中のyは $(\text{CaO} + \text{MgO} + \text{ZnO}) : \text{SiO}_2 = 2 : y$ と表した際のyである。

30

【0020】

得られた焼結体について誘電率、誘電正接を以下の方法で評価した。測定はJIS R1627「マイクロ波用ファインセラミックスの誘電率特性の試験方法」に準じて行った。すなわち、上記の多層基板用磁器を直径1～5mm、厚み2～3mmの試料を円盤状に切り出し、円盤状試料の両端面を2枚の平行導体板で短絡して誘電体共振器を構成し、この誘電体共振器のTE011モードの共振特性と無負荷Qを17GHzでネットワークアナライザー（ヒューレット・パッカード社製8722C）を用いて測定し、誘電率と誘電損失(tanδ)を算定した。測定結果を表2に示す。

40

また、各試料についてX線回折測定を行い、標準試料のX線回折ピークとの比較によって磁器の構成相を同定したところ、ディオプサイト系結晶相($\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$)、ウイレマイト系結晶相(Zn_2SiO_4)、 $\text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$ 系結晶相、 $\text{Li}_2\text{O} - \text{SiO}_2$ 系結晶相の各相の存在が確認された。各相の有無についても表2に併せて示す。

【0021】

表1及び表2の結果から明らかなように、CaO、MgO、ZnO、 SiO_2 、 B_2O_3 、 Bi_2O_3 及び Li_2O を本発明の範囲で含み、結晶相としてディオプサイト系結晶相

50

、ウイレマイト系結晶相、 $\text{Bi}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$ 系結晶相、 $\text{B}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$ 系非晶質相、 $\text{Li}_2\text{O} - \text{SiO}_2$ 系結晶相が主として析出した本発明の磁器は、いずれも誘電率が8.5以下、17GHzでの誘電正接が 1.0×10^{-3} 以下の優れた値を示した。

【0022】

比較例1～7

平均粒径が $1\mu\text{m}$ 以下の $\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$ 、 Zn_2SiO_4 、 ZnO 、 SiO_2 、 B_2O_3 、 Bi_2O_3 、 Li_2CO_3 を各酸化物換算の組成が表1の割合となるように混合し、実施例1～27と同様にして、表1の条件下に焼成して多層基板用磁器を得た。結果を表1及び表2にまとめて示す。

Bi_2O_3 及び／または B_2O_3 量が13.5質量%を超える試料（比較例1）では焼結助剤である Bi_2O_3 及び／または B_2O_3 量が過剰なため誘電損失が 1.0×10^{-3} 以上となり、また、 Li_2O 量が4.5質量%を超える試料（比較例2）でも焼結助剤である Li_2O が過剰なため誘電損失が 1.0×10^{-3} 以上となっている。 Li_2O が1.5質量%より少ない試料（比較例3）では、800～1000℃の焼成では磁器を十分に緻密化することができなかった。また、 x が0.1未満の試料（比較例4）ではディオプサイト形成が不十分であり、 x が0.9を超える試料（比較例5）ではウイレマイト形成が不十分である。また、 y が1.3未満の試料（比較例6）では SiO_2 のと反応しきらない CaO 、 MgO または ZnO が存在し、 y が3.6を超える試料（比較例7）では過剰な SiO_2 の結晶化が不十分で誘電損失が 1.0×10^{-3} 以上となっている。

【0023】

【表1】

20

試料 No.	組成 (質量%)								
	CaO	MgO	ZnO	SiO ₂	B ₂ O ₃	Bi ₂ O ₃	Li ₂ O	x	y
実施例 1	18.31	13.16	13.29	53.00	0.00	0.00	2.24	0.8	2.16
実施例 2	11.53	8.29	33.50	44.55	0.00	0.00	2.13	0.5	1.80
実施例 3	4.65	3.34	54.05	35.93	0.00	0.00	2.03	0.2	1.44
実施例 4	16.98	12.21	12.33	49.15	7.25	0.00	2.08	0.8	2.16
実施例 5	8.58	6.17	37.39	38.65	7.26	0.00	1.95	0.4	1.68
実施例 6	4.31	3.10	50.12	33.33	7.26	0.00	1.88	0.2	1.44
実施例 7	10.06	7.23	29.22	38.83	12.80	0.00	1.86	0.5	1.80
実施例 8	16.98	12.21	12.33	49.15	0.00	7.25	2.08	0.8	2.16
実施例 9	8.58	6.17	37.39	38.65	0.00	7.26	1.95	0.4	1.68
実施例 10	4.31	3.10	50.12	33.33	0.00	7.26	1.88	0.2	1.44
実施例 11	10.06	7.23	29.22	38.83	0.00	12.80	1.86	0.5	1.80
実施例 12	17.95	12.91	13.04	51.80	1.10	1.10	2.10	0.8	2.16
実施例 13	11.31	8.13	32.86	43.40	1.10	1.10	2.10	0.5	1.80
実施例 14	4.56	3.28	53.01	34.85	1.10	1.10	2.10	0.2	1.44
実施例 15	10.6	7.62	30.79	40.79	0.90	7.20	2.10	0.5	1.80
実施例 16	10.6	7.62	30.79	40.79	7.20	0.90	2.10	0.5	1.80
実施例 17	10.5	7.55	30.52	40.41	4.46	4.46	2.10	0.5	1.80
実施例 18	8.67	6.23	37.76	39.03	0.00	7.33	0.98	0.4	1.68
実施例 19	8.42	6.05	36.67	37.91	7.12	0.00	3.83	0.4	1.68
実施例 20	8.42	6.05	36.67	37.91	0.00	7.12	3.83	0.4	1.68
実施例 21	17.57	12.63	12.76	50.86	0.94	0.94	4.30	0.8	2.16
実施例 22	12.48	8.97	9.06	60.22	7.26	0.00	2.01	0.8	3.60
実施例 23	6.69	4.81	29.13	50.18	7.27	0.00	1.92	0.4	2.80
実施例 24	3.46	2.49	40.28	44.63	7.27	0.00	1.87	0.2	2.40
実施例 25	12.48	8.97	9.06	60.22	0.00	7.26	2.01	0.8	3.60
実施例 26	6.69	4.81	29.13	50.18	0.00	7.27	1.92	0.4	2.80
実施例 27	3.46	2.49	40.28	44.63	0.00	7.27	1.87	0.2	2.40
比較例 1	9.65	6.94	28.02	37.23	0.00	16.37	1.79	0.5	1.80
比較例 2	10.39	7.47	30.17	40.11	7.05	0.00	4.81	0.4	1.68
比較例 3	10.79	7.75	31.33	41.63	8.00	0.00	0.50	0.5	1.80
比較例 4	19.83	14.25	3.03	52.38	8.41	0.00	2.10	0.95	2.34
比較例 5	1.08	0.78	59.73	29.25	7.33	0.00	1.83	0.05	1.37
比較例 6	4.51	3.24	52.38	30.46	7.53	0.00	1.88	0.2	1.26
比較例 7	5.24	3.77	22.83	58.99	7.27	0.00	1.90	0.4	4.20

10

20

30

40

【 0 0 2 4 】

【 表 2 】

試料 No	焼成条件		嵩密度 g/cm ³	誘電率	tan δ %	構成相			
	温度 ℃	時間 hr				テイオブ サイト系	ウル マト系	Bi ₂ O ₃ - SiO ₂ 系	Li ₂ O- SiO ₂ 系
実施例 1	970	1.00	3.20	6.63	0.074	◎	◎	-	○
実施例 2	970	1.00	3.48	6.42	0.074	◎	◎	-	○
実施例 3	970	1.00	3.58	6.23	0.082	◎	◎	-	○
実施例 4	875	1.00	3.21	7.22	0.048	◎	◎	-	○
実施例 5	875	1.00	3.52	6.83	0.048	◎	◎	-	○
実施例 6	875	1.00	3.61	6.52	0.046	◎	◎	-	○
実施例 7	875	1.00	3.49	6.58	0.070	◎	◎	-	○
実施例 8	870	1.00	3.20	7.07	0.047	◎	◎	○	○
実施例 9	870	1.00	3.66	6.87	0.057	◎	◎	○	○
実施例 10	870	1.00	3.75	7.00	0.057	◎	◎	○	○
実施例 11	870	1.00	3.57	6.99	0.064	◎	◎	○	○
実施例 12	925	1.00	3.19	7.60	0.043	◎	◎	-	○
実施例 13	925	1.00	3.45	7.69	0.043	◎	◎	-	○
実施例 14	925	1.00	3.67	7.04	0.059	◎	◎	-	○
実施例 15	890	1.00	3.56	8.46	0.079	◎	◎	-	○
実施例 16	905	1.00	3.26	7.17	0.047	◎	◎	-	○
実施例 17	890	1.00	3.52	7.77	0.080	◎	◎	-	○
実施例 18	940	1.00	3.51	6.75	0.060	◎	◎	○	○
実施例 19	860	1.00	3.41	6.81	0.074	◎	◎	○	○
実施例 20	860	1.00	3.37	6.80	0.044	◎	◎	-	○
実施例 21	890	1.00	3.04	7.68	0.099	◎	◎	-	○
実施例 22	920	1.00	3.03	5.87	0.067	◎	◎	○	○
実施例 23	920	1.00	2.88	5.70	0.041	◎	◎	○	○
実施例 24	920	1.00	2.84	5.62	0.043	◎	◎	○	○
実施例 25	920	1.00	3.21	7.10	0.067	◎	◎	-	○
実施例 26	920	1.00	3.42	6.76	0.085	◎	◎	-	○
実施例 27	920	1.00	3.54	6.56	0.072	◎	◎	-	○
比較例 1	875	1.00	3.46	6.25	0.106	◎	◎	-	○
比較例 2	860	1.00	3.39	6.83	0.103	◎	◎	-	○
比較例 3	990	1.00	3.31	6.45	0.112	◎	◎	-	○
比較例 4	900	1.00	3.08	6.87	0.106	◎	◎	-	○
比較例 5	900	1.00	3.67	6.67	0.107	◎	◎	-	○
比較例 6	900	1.00	3.12	6.31	0.105	◎	◎	-	○
比較例 7	940	1.00	2.81	5.62	0.115	◎	◎	-	○

*各結晶相の有無を表す。◎は主相、○は含有が確認されたもの。－は確認されないもの。

【0025】

【発明の効果】

以上詳述した通り、本発明の低温焼成磁器組成物は、誘電率が低く、17GHzの高周波においても誘電損失が小さいので、高周波用途のマイクロ波用回路素子等において最適である。しかも、800℃～1000℃で焼成できるため、Cu、Au、Ag等による配線を同時焼成により形成することができる。

フロントページの続き

(72)発明者 水島 清

石川県松任市相木町383番地 ニッコー株式会社内

(72)発明者 滝本 幹夫

石川県松任市相木町383番地 ニッコー株式会社内

Fターム(参考) 4G030 AA02 AA07 AA08 AA32 AA35 AA37 AA43 BA09 CA01 CA08
GA04 GA11 GA14 GA15 GA17 GA20 GA25 GA27
5G303 AA01 AA05 AB05 AB15 BA12 CA01 CB05 CB06 CB16 CB17
CB30 CB38
5J006 HC07